(19) 世界知的所有権機関 国際事務局





(43) 国際公開日 2005 年10 月27 日 (27.10.2005)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2005/100472 A1

(51) 国際特許分類7:

C08L 63/00

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2004/004672

(22) 国際出願日:

2004年3月31日(31.03.2004)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): ニチバン 株式会社 (NICHIBAN COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒1120014 東京都文京区関ロニ丁目3番3号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 杉木 孝至 (SUGIKI, Takanori). 西田雄一 (NISHIDA, Yuichi).
- (74) 代理人: 津国肇 (TSUKUNI, Hajime); 〒1050001 東京 都港区虎ノ門 1 丁目 2 2 番 1 2 号 S V A X T S ビ ル Tokyo (JP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

- (54) Title: PHOTO-RADICAL-CURABLE RESIN COMPOSITION CONTAINING EPOXY RESIN
- (54) 発明の名称: エポキシ樹脂を含有する光ラジカル硬化性樹脂組成物

A...FORMULA 1: n=2 to 4

(57) Abstract: A resin composition which comprises an epoxy resin and a photo-radical-curable resin, characterized by containing a triphenylmethane type leuco dye represented by the formula (1). After this resin composition is applied, the cured state thereof can be visually and easily ascertained in a short time.

(57) 要約:

式1:

で示されるトリフェニルメタン系ロイコ色素を含有することを特徴とする、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物である。この樹脂組成物は、施行時に硬化状態を視覚的に簡単に短時間で確認できる。

明細書

エポキシ樹脂を含有する光ラジカル硬化性樹脂組成物

(技術分野)

5

本発明は、表面コート剤、接着剤、粘着剤、封止剤、塗料等の産業用途に用いる、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物であって、これを光硬化させる時に、簡単に硬化状態を視覚的な着色によって確認できる組成物及びその硬化状態等の光照射履歴を確認する方法に関する。本発明は、更に、新規なトリフェニルメタン系ロイコ色素に関する。

10

(背景技術)

光ラジカル硬化性樹脂は、表面コート剤、接着剤、粘着剤、封止剤、塗料など一般に広く使用されており、その硬化状態を確認する方法として、光により酸化され青紫色に変色するロイコクリスタルバイオレット(LCV)を均一に添加することで、光照射時に組成物を着色させる方法が知られている(特開昭62-153377及び特開昭62-205180)。

15

一方、発明者らは、既に、光ラジカル硬化性樹脂に更に熱硬化性エポキシ樹脂を添加した樹脂組成物を報告している(WO 02/44299-A1)。この組成物は、光照射による硬化後、更に熱硬化することにより、被着体への密着性、表面硬度等を格段に向上させることができる。

20

しかしながら、光ラジカル硬化性樹脂中に接着性能の向上などのためにエポキシ樹脂を含有させた樹脂組成物の場合、光照射による硬化を確認するために添加したLCVは、数日から数週間で光照射しても着色しなくなってしまう問題があることがわかった。また、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物にLCVを添加した場合に、保存中に該樹脂組成物全体が増粘してしまう問題があることがわかった。

25

本発明の目的は、上記問題を解決し、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物であって、これが光照射により発色し、硬化したかどうかを視覚的に簡便に短時間で確認できる樹脂組成物およびその硬化状態等の光照射

履歴を確認する方法を提供することである。

(発明の開示)

5

10

15

20

本発明者は、鋭意研究した結果、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物において、LCVを使用すると、その構造中の3級アミンであるジメチルアニリン構造のため、保存中にエポキシ樹脂と反応して失活してしまい、数日から数週間で光照射しても着色しなくなること及びLCVがエポキシ樹脂の硬化触媒として働くので、エポキシ樹脂同士が重合して該樹脂組成物全体が増粘することを見出し、そして、LCVの代りに、LCV構造中のメチル基をエチル基、プロピル基、ブチル基などに置き換えたLCV誘導体を用いることで上記目的を達成できることを知見し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は、

式1:

$$H_{2n+1}C_n$$
 $H_{2n+1}C_n$
 C_nH_{2n+1}
 C_nH_{2n+1}

式 1: n=2~4

で示されるトリフェニルメタン系ロイコ色素を含有することを特徴とする、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物である。

本発明は、トリフェニルメタン系ロイコ色素が、4, 4', 4'' ートリス(ジエチルアミノ)トリフェニルメタン(式1のn=2の構造)である、上記の樹脂組成物である。

本発明は、光ラジカル硬化性樹脂がラジカル重合可能な不飽和二重結合を有する化合物及び光ラジカル重合開始剤を含む、上記の樹脂組成物である。

本発明は、上記の樹脂組成物に光を照射して、変色させることを含む、該樹脂組成物の光照射履歴を確認する方法である。

10

15

20

25

本発明は、更に、上記式1で示されるトリフェニルメタン系ロイコ色素である (ただし、ビス (4-ジエチルアミノフェニル) -4-N, N-ジプロピルアミ ノフェニルメタンを除く)。

(発明を実施するための最良の形態)

本発明におけるトリフェニルメタン系ロイコ色素は、前記の式1を有するものであり、これは、LCVにおけるジメチルアニリン構造のメチル基が炭素数 $2\sim 4$ の直鎖又は分岐鎖のアルキル基に置き換わった構造を有するLCV誘導体である。アルキル基として、炭素数 $2\sim 4$ の直鎖又は分岐鎖のアルキル基が混在していても良い。好ましいアルキル基は、エチル基、n-プロピル基及びn-ブチル基である。全てのアルキル基がエチル基である場合、すなわち、4, 4 ', 4 '' - トリス(ジエチルアミノ)トリフェニルメタンが特に好ましい。

本発明の樹脂組成物においては、光照射時に光ラジカル重合開始剤から発生するラジカルが光ラジカル硬化性樹脂を重合し硬化させるが、上記LCV誘導体を添加しておくことで、同時にLCV誘導体のメチン水素の引抜きが起こり、二重結合が共役し発色する。このことにより、エポキシ樹脂の共存下であっても、樹脂組成物の光硬化の程度が視覚的に確認できる。

また、本発明の樹脂組成物は、LCV誘導体を添加しても、保存中にエポキシ 樹脂の重合による硬化が起こらず、長期間の保存に耐える。

上記のLCV誘導体は、特開平2-58573などに記載の公知の方法又はそれと類似の方法により容易に合成することができる。

上記LCV誘導体の添加量は、樹脂組成物の種類、物性により変化するが、少なすぎると発色濃度が低く確認方法としての有効性が薄れ、また、多すぎると光を吸収し硬化阻害を引き起こす可能性があり、樹脂組成物に対し、0.005~5重量%、好ましくは0.005~0.5重量%である。

本発明の樹脂組成物は、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂の量比に本質的には無関係に機能する。LCVを使用する従来の方法では、エポキシ樹脂が微量でも存在すれば本発明の目的の達成は不可能であったところ、本発明によりエポキシ樹脂の多寡にかかわらず目的の達成が可能となった。

10

15

20

25

本発明の樹脂組成物におけるエポキシ樹脂としては、特に制限はないが、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、ダイマー酸ジグリシジルエステル類、グリコールジグリシジルエーテル類が挙げられる。

本発明の樹脂組成物におけるエポキシ樹脂の割合は、樹脂組成物に対して、微量でも存在していればよく、 $0.5\sim90$ 重量%、特に $5\sim80$ 重量%、更に $10\sim70$ 重量%であるのが好ましい。

本発明の樹脂組成物における光ラジカル硬化性樹脂は、ラジカル重合可能な不飽和二重結合を有する化合物及び光ラジカル重合開始剤を主成分として含み得る。

本発明の樹脂組成物における光ラジカル硬化性樹脂の割合は、特に限定されないが、樹脂組成物に対して、 $10\sim99.5$ 重量%、特に $20\sim95$ 重量%、更に $30\sim90$ 重量%であることが好ましい。

ラジカル重合可能な不飽和二重結合を有する化合物としては、特に限定はされないが、(メタ) アクリルモノマー類、(メタ) アクリルオリゴマー類、ビニル系モノマー、アリル化合物などを挙げることができる。

(メタ) アクリルモノマー類としては、(メタ) アクリル酸エチル、(メタ) アクリル酸ブチル、(メタ) アクリル酸 2 - エチルヘキシル、(メタ) アクリル酸イソオクチル等のアルキル (メタ) アクリレート、(メタ) アクリル酸、 2 - ヒドロキシエチル (メタ) アクリレート、ポリエチレングリコール (メタ) アクリレート、イソボルニル (メタ) アクリレート、フェノキシエチル (メタ) アクリレート、1, 4ブタンジオールジ (メタ) アクリレート、トリメチロールプロパントリ (メタ) アクリレートが例示される。

(メタ) アクリルオリゴマー類としては、エポキシ(メタ) アクリレート、ウレタン(メタ) アクリレート、ポリエステル(メタ) アクリレート、ポリブタジエン(メタ) アクリレートが例示される。

ビニル系モノマーとして、酢酸ビニル、スチレン、ビニルメチルエーテル、アクリルアミドが例示される。

アリル化合物としては、イソフタル酸ジアリル、アジピン酸ジアリル、マレイン酸ジアリル、トリメリット酸トリアリルなどが例示される。

10

15

20

. 25

光ラジカル重合開始剤としては、光開裂型、光水素引抜き型のいずれでも良く、ベンゾイル系、ベンゾインアルキルエーテル系、アセトフェノン系、ベンゾフェノン系、ホスフィンオキサイド系、チオキサントン系などが例示される。その添加量は、ラジカル重合可能な不飽和二重結合を有する化合物に対して、0.001~20重量%、好ましくは0.01~10重量%、特に好ましくは0.1~5重量%である。

本発明の樹脂組成物は、更に必要に応じて、エポキシ硬化剤、熱可塑性樹脂、 充填剤、着色剤(顔料,染料)、老化防止剤、安定剤などを含有しても良い。

エポキシ硬化剤としては、熱活性型硬化剤が好ましく、ジシアミンジアミド、 イミダゾール塩、ルイス酸塩、ジヒドラジドが例示される。

熱可塑性樹脂としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル、ポリアミド、ポリブタジエン、ポリブテン、ポリイソプレン、ポリビニルブチラール、エチレン一酢酸ビニル共重合体、エチレンーエチルアクリレート共重合体、ポリ酢酸ビニル、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、スチレンーブタジエンゴム、アクリルニトリルーブタジエンゴム、スチレンーブタジエンースチレンブロック共重合体、スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体等が例示される。

充填剤としては、シリカ、水酸化アルミニウム、酸化チタン、炭酸カルシウム、 タルク等の無機系粉体、ポリメチルメタクリレート微粒子等の有機系粉体が例示 される。

着色剤(顔料,染料)としては、硫酸バリウム、炭酸バリウム、クレー、アルミナなどの体質顔料、ペリレン類、ジフェニルアントラセン類などの蛍光染料などが、老化防止剤としては、キノリン類、ヒドロキノン類、モノフェノール類、ポリフェノール類、ヒンダードフェノール類などが、安定剤としては、サリチル酸誘導体類、ベンゾフェノン類、ベンゾトリアゾール類、ヒンダードアミン類などが例示される。

本発明の樹脂組成物は、各成分を高速撹拌機等で撹拌し溶解あるいは均一に分散した後、脱泡する等の公知の方法により製造することができる。

本発明の樹脂組成物の性状は、常温では粘稠なペースト状が好ましく、透明性を有していることが好ましいが、本発明の目的を損なわない範囲内で用途に応じ

て適宜設計することができる。

本発明の樹脂組成物は、その表面へ光照射することにより硬化する。光は紫外線、電子線、赤外線等の不飽和二重結合を有するモノマー、オリゴマーをラジカル重合させるエネルギー源であれば良く、光源はキセノンランプ、メタルハライドランプなどの公知のランプや電子線発生装置が用いられる。

本発明の樹脂組成物は、光硬化の後、これをさらに熱硬化させる。熱硬化により、被着体への密着性、表面硬度等を格段に向上させることができる。

(実施例)

5

15

20

25

10 以下実施例をもって本発明を説明するが、本発明は実施例に限定されるものではない。

[色素1 (LCV類似体1) の合成]

イソプロピルアルコール 30m1にジエチルアニリン 32.8g、p-N, N-2 ルアミノベンズアルデヒド 17.7g 及び尿素 1.6g を加え、撹拌しながら 95% (重量%、以下の%も同じ)硫酸 11.5g を徐々に加えた。得られた混合物を 24 時間還流した後、水中に注いだ。 20% 水酸化ナトリウム水溶液を加え p Hを $8\sim9$ に調整し、トルエンで抽出した後、トルエン層を減圧乾固して得た残渣をエタノールから再結晶し、淡灰色結晶の 4,4',4'' ートリス(ジエチルアミノ)トリフェニルメタン 21g (収率 46%) を得た。

「色素2(LCV類似体2)の合成]

イソプロピルアルコール $30 \, \text{m}$ 1 にジプロピルアニリン $38.9 \, \text{g}$ 、 p-N 、 N-ジプロピルアミノベンズアルデヒド $20.5 \, \text{g}$ 、 $R素 \, 1.6 \, \text{g}$ を加え、 撹拌しながら 95% 硫酸 $11.5 \, \text{g}$ を徐々に加えた。これを $24 \, \text{時間還流した後}$ 、 水中に注いだ。 20% 水酸化ナトリウム水溶液を加え、 pH を $8\sim 9$ に調整し、 トルエンで抽出した後、減圧乾固した残渣をエタノールから再結晶し、淡灰色結晶の 4 、 4

[色素3 (LCV類似体3)の合成]

イソプロピルアルコール30mlにジブチルアニリン45.1g、p-N, N

ージブチルアミノベンズアルデヒド23.3g、尿素1.6gを加え、撹拌しながら95%硫酸11.5gを徐々に加えた。これを24時間還流した後、水中に注いだ。20%水酸化ナトリウム水溶液を加え、pHを8~9に調整し、トルエンで抽出した後、減圧乾固した残渣をエタノールから再結晶し、淡灰色結晶の4,4',4''-トリス(ジブチルアミノ)トリフェニルメタン25g(収率40%)を得た。

「樹脂組成物1~5の製造]

表1に示す組成物を遮光状態で温度を50℃以下に制御しながら高速撹拌機で 均一に混合し、粘稠な樹脂組成物を得た。

10

15

5

表 1. 組成物

成分名	成分の説明	組成物 1	組成物 2	組成物3	組成物 4	組成物 5
紫光 UV7000B	ウレタンアクリレートオリコ゛マー	100		50	30	50
(日本合成化学工業)						
ライトアクリレート PO-A	フェノキシエチルアクリレート		100	50	20	80
(共栄社化学)						
エピコート 828	エホ°キシ樹脂	50	50	50	100	20
(ジャパンエポキシレジン)						
クレイトン D1155	エチレンーフ゛タシ゛エンースチレン		10	5		10
(クレイトンホ°リマー)	ブロック共重合体					
アエロシ゛ル 200	無水シリカ	10				
(日本アエロジル)						
7エロシ゛ル R972	疎水性シリカ		10	10		10
(日本アエロジル)						
DICY-15	エポキシ硬化剤	3	3	3	6	1. 2
(ジャパンエポキシレジン)						
ダロキュア 1173	光ラジカル重合開始剤	1	1	1	0. 5	1.3
(チハ゛スヘ゜シャルティケミカルス゛)		ļ				

実施例1~7

表 2 に示す組み合わせで、色素を樹脂組成物に混合し、充分に溶解した。これを調製直後、2 3 \mathbb{C} に1 ヶ月遮光保管後、4 0 \mathbb{C} に1 ヶ月遮光保管後で、粘度の上昇と \mathbb{U} \mathbb

実施例 $1\sim7$ では保管による粘度の変化がなく安定であり、UV照射によって 鮮明な色変化が観察できた。一方、比較例 $1\sim5$ では保管による粘度の上昇が見 られ、UV照射による色変化が少なく実際上UV照射の有無を目視で確認できる レベルではなかった。

	樹脂	色素	調製	直後	23℃×1ヶ月保管後		40℃×1ヶ月保管後		管後	
	組成物	番号	f	Ę.	増粘	Ð	<u> </u>	増粘	色	1
	番号	0. 05%	UV 前	UV 後	UV	前	UV 後	UV :	前	UV 後
実施例1	1	1	白	青紫	なし	白	青紫	なし	白	青紫
実施例 2	1	2	白	青紫	なし	白	青紫	なし	白	青紫
実施例3	1	3	白	青紫	なし	白	青紫	なし	白	青紫
実施例4	2	1	白	青紫	なし	白	青紫	なし	白	青紫_
実施例 5	3	2	白	青紫	なし	白	青紫	なし	白	青紫
実施例6	4	3	白	青紫	なし	白	青紫	なし	白	青紫
実施例7	5	1	白	青紫	なし	白	青紫	なし	白	青紫
比較例1	1	LCV	白	青紫	微增	白	微青	大	白	白
比較例 2	2	LCV	白	青紫	微增	白	微青	大	白	白
比較例3	3	LCV	白	青紫	微増	白	微青	大	白	白
比較例 4	4	LCV	白	青紫	大	白	白	ゲル化	白	白
比較例 5	5	LCV	白	青紫	なし	白	微青	微增	白	白

表 2. 実施例、比較例

5 LCV:山本化成(株)製

.10

15

(産業上の利用可能性)

本発明によれば、優れた保存性を有し、かつ施工時には光照射により発色し、 硬化状態を視覚的に簡便に短時間で確認することができ、かつ、光硬化に続く熱 硬化の後には優れた被着体への接着性、表面硬度等を有する、エポキシ樹脂及び 光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物が得られる。

また、本発明によれば、エポキシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物の光照射履歴を視覚的に簡便に短時間に確認する方法が提供できる。

更に、本発明によれば、エポキシ樹脂の存在下において、優れた保存性を有し、かつ光ラジカル硬化性樹脂の施行時には光照射により発色し、硬化状態を視覚的 に簡便に短時間で確認できる新規なトリフェニルメタン系色素が提供できる。

請求の範囲

1. 式1:

$$H_{2n+1}C_n$$
 $H_{2n+1}C_n$
 C_nH_{2n+1}
 C_nH_{2n+1}

式1: n=2~4

5 で示されるトリフェニルメタン系ロイコ色素を含有することを特徴とする、エポ キシ樹脂及び光ラジカル硬化性樹脂を含有する樹脂組成物。

2. トリフェニルメタン系ロイコ色素が、4, 4', 4'' ートリス(ジエチルアミノ)トリフェニルメタン(式1のn=2の構造)である、請求項1に記載の樹脂組成物。

3. 光ラジカル硬化性樹脂が、ラジカル重合可能な不飽和二重結合を有する化合物及び光ラジカル重合開始剤を含む、請求項1又は2に記載の樹脂組成物。

4. 請求項1~3のいずれか 1 項記載の樹脂組成物に光を照射して、変色させることを含む、該樹脂組成物の光照射履歴を確認する方法。

5. 式1:

$$H_{2n+1}C_n$$
 $H_{2n+1}C_n$
 C_nH_{2n+1}
 C_nH_{2n+1}
 C_nH_{2n+1}

式 1: n=2~4

15

10

で示されるトリフェニルメタン系ロイコ色素(ただし、ビス(4-ジエチルアミ ノフェニル)-4-N, N-ジプロピルアミノフェニルメタンを除く)。 6. 4, 4′, 4″ートリス(ジエチルアミノ)トリフェニルメタン。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

			101/0120	7047004072	
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C08L63/00					
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC					
B. FIELDS SE.					
	tentation searched (classification system followed by classification control c	ssification symbols)			
Int.CI	C08E83/00-83/10				
·	•				
Documentation s	earched other than minimum documentation to the exte	nt that such documents are	included in the f	ields searched	
Boomenane	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·				
Electronic data b	ase consulted during the international search (name of	lata base and, where practic	able, search terr	ns used)	
WPIL, I		. <i>*</i>			
C. DOCUMEN	TS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where ap			Relevant to claim No.	
X	JP 2001-242249 A (The Japan 07 September, 2001 (07.09.01) Full text & US 6524763 B1		.),	5-6	
	JP 63-123038 A (Nitto Electr Ltd.), 26 May, 1988 (26.05.88), Full text (Family: none)	5-,6.			
A	JP 9-34109 A (Tamura Kaken K 07 February, 1997 (07.02.97), Full text (Family: none)),	1-6	
× Further do	cuments are listed in the continuation of Box C.	See patent family a	nnex.		
"A" document d	gories of cited documents: efining the general state of the art which is not considered icular relevance	date and not in conflict the principle or theory	t with the applicat underlying the inv		
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive					
"L" document w	"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be				
	special reason (as specified) considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination combined with one or more other such documents, such combination				
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family					
Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report					
14 June, 2004 (14.06.04) 29 June, 2004 (29.06.04)					
Name and mailing address of the ISA/ Authorized officer Tablana Go. Batant Office					
Japanese Patent Office					
Facsimile No. Telephone No. Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2004)					
form PC1/ISA/210 (second sheet) (January 2004)					

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2004/004672

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
A	JP 2-58573 A (Hodogaya Chemical Co., Ltd.), 27 February, 1990 (27.02.90), Full text (Family: none)	1-6		
		,		
·				

1	属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) C08L63/00			
調査を行った最	テった分野 最小限資料(国際特許分類(IPC)) C08L63/00-63/10			
最小限資料以外	小の資料で調査を行った分野に含まれるもの	,		
	用した電子データベース(データベースの名称、 Derwent	調査に使用した用語)		
 C. 関連する	ると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	・きけ、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
X	JP 2001-242249 A (日本原子力発電标 & US 6524763 B1		5-6	
X	JP 63-123038 A (日東電気工業株式会) (ファミリーなし)	会社) 1988. 05. 26,全文	5-6	
A	JP 9-34109 A (タムラ化研株式会社) (ファミリーなし)	1997. 02. 07,全文	1-6	
区欄の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別]紙を参照。	
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了	了した日 14.06.2004	国際調査報告の発送日 29.6.2	2004	
日本国	の名称及びあて先 国特許庁(ISA/JP) 郎便番号100-8915 部千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 加賀 直人 電話番号 03-3581-1101	4 J 9 8 4 3 内線 3 4 5 5	

 C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の		関連する
カテゴリー* A	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 JP 2-58573 A (保土谷化学工業株式会社)1990.02.27, 全文 (ファミリーなし)	請求の範囲の番号 1 - 6
		-